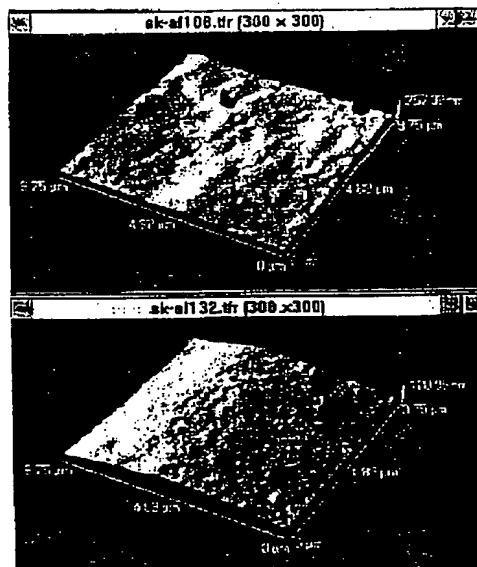




(51) 国際特許分類 B22F 1/00, C09C 1/64, 3/04	A1	(11) 国際公開番号 WO99/54074  (43) 国際公開日 1999年10月28日(28.10.99)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/02072  (22) 国際出願日 1999年4月19日(19.04.99)  (30) 優先権データ 特願平10/123879 1998年4月20日(20.04.98) JP  (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 旭化成メタルズ株式会社 (ASAHI KASEI METALS LIMITED)[JP/JP] 〒100-0006 東京都千代田区有楽町1丁目1番2号 Tokyo, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 入 清(IRI, Kiyoshi)[JP/JP] 〒309-1704 茨城県西茨城郡友部町美原2-6-11 Ibaraki, (JP) 杉本篤俊(SUGIMOTO, Atsutoshi)[JP/JP] 〒309-1717 茨城県西茨城郡友部町旭町118-2 平野ハイツ202号 Ibaraki, (JP) (74) 代理人 浅村 皓, 外(ASAMURA, Kiyoshi et al.) 〒100-0004 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 新大手町ビル331 Tokyo, (JP)		(81) 指定国 AU, JP, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)  添付公開書類 国際調査報告書
(54) Title: ALUMINUM PIGMENT  (54) 発明の名称 アルミニウム顔料及びその製造方法  (57) Abstract An aluminum pigment which has an average particle diameter $d_{50}$ of 5 to 35 $\mu\text{m}$ , a ratio of an average particle diameter $d_{50}$ to an average thickness $t$ ( $\mu\text{m}$ ) of 30 to 90, and an average surface roughness $R_a$ of 20 nm or less.		



(57)要約

平均粒径  $d_{50}$  が  $5 \sim 35 \mu m$  であり、平均厚み  $t$  ( $\mu m$ ) に対する平均粒径  $d_{50}$  ( $\mu m$ ) の比が  $30 \sim 90$  であり、かつ、平均表面粗さ  $R_a$  が  $20 nm$  以下であるアルミニウム顔料。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロベニア
AZ	アゼルバイジャン	GB	ガボン	LS	レソト	SK	スロヴァキア
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GD	グレナダ	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GE	グルジア	LV	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GH	ガーナ	MA	モロッコ	SS	スウーランド
BG	ブルガリア	GN	ギニア	MC	モナコ	TD	チャード
BJ	ベナン	GW	ギニア・ビサウ	MD	モルドヴァ	TG	トーゴ
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MG	マダガスカル	TJ	タジキスタン
BY	ベラルーシ	HR	クロアチア	MK	マケドニア	TZ	タンザニア
CA	カナダ	HU	ハンガリー		共和国	TM	トルクメニスタン
CC	中央アフリカ	ID	インドネシア	ML	マリ	TR	トルコ
CG	コンゴ	IE	アイルランド	MN	モンゴル	TT	トリニダード・トバゴ
CH	スイス	IL	イスラエル	MR	モーリタニア	UA	ウクライナ
CI	コートジボワール	IN	インド	MW	マラウイ	UG	ウガンダ
CM	カメルーン	IS	アイスランド	MX	メキシコ	US	米国
CN	中国	IT	イタリア	NE	ニジェール	UZ	ウズベキスタン
CR	コスタ・リカ	JP	日本	NL	オランダ	VN	ベトナム
CZ	チェコ	KE	ケニア	NO	ノルウェー	YU	ユーゴスラビア
DE	ドイツ	KG	キルギスタン	NZ	ニュージーランド	ZA	南アフリカ共和国
DK	デンマーク	KP	北朝鮮	PL	ポーランド	ZW	ジンバブエ
		KR	韓国	PT	ポルトガル		
				RO	ルーマニア		

## 明 細 書

## アルミニウム顔料及びその製造方法

## 5 技術分野

本発明は、自動車ボディや部品の高級メタリック塗料、自動車補修用メタリック塗料、家電用メタリック塗料、工業用メタリック塗料等の高級メタリック塗料分野、グラビア印刷、オフセット印刷、スクリーン印刷等の高級メタリック印刷インキ分野、及び、高級メタリック樹脂練り込み分野等に使用されるアルミニウム

10 ム顔料、並びに、その製造方法に関する。

更に詳しくは、本発明は、上記用途において通常の方法により形成した塗膜、印刷又はフィルム等に対し、従来にない高い光の反射率と極めて高いフロップ性、すなわち、光学的異方性を与え得る高輝度高フロップ性アルミニウム顔料及びその製造方法に関する。

## 15 背景技術

アルミニウム顔料は、他の顔料にない独特なメタリック感と、下地に対する優れた隠蔽力を併せ持つ顔料として、前述した分野に多用されている。

近年、自動車ボディ塗装におけるファッション性が重要視されるようになり、自動車の本来的機能と同等以上の価値観で評価されるようになってきた。特にここ数年における自動車ボディ塗装のファッション性の傾向を見ると、従来から根強かった白色やギラギラとした単調なシルバーメタリック調は減少し、光輝度が強く、見る角度によって塗装外観が変化する光学的異方性の強い塗膜の要求が高まってきた。

20 そのような高い光の反射率を得ることを目的としたアルミニウム顔料又はその製造方法としては以下のようなものがある。

特許第2575516号には、高い隠蔽力と高い光の反射率を兼備したアルミニウム顔料が記載されている。また、特開昭49-14358号公報には湿式ボールミル法にてアルミニウム粉の表面を磨き、高い反射率を備えたアルミニウム顔料を得る方法が記載されている。また、特公昭54-36607号公報にはス

パークリング効果のすぐれたメタリック塗膜の形成方法などが記載されている。さらに、特開平 8-170034 号公報には、塗膜に強い光輝感及び優れた外観の塗膜を与えるアルミニウム顔料が記載されている。さらにまた、特表平 7-509266 号公報には、ほぼ球形の研磨された金属粉末顔料粒子が開示されている。

しかしながら、何れの技術においても、アルミニウム顔料として、現状の望まれる高い光輝度と高いフロップ性を満足させるものではない。

#### 発明の開示

本発明は、高度な光学的特性、特に、高い光輝度及び高いフロップ性を有するアルミニウム顔料、並びに、かかるアルミニウム顔料を極めて簡便に、かつ再現性よく製造することが可能な製造方法を提供するものである。

上記課題を解決するために、本発明者らは、アルミニウム顔料の基本的物性及び光学的特性、並びに、製造条件の関係について鋭意かつ基礎的に検討を重ねた結果、アルミニウム顔料の平均粒径、アルミニウム顔料の平均厚みに対する平均粒径、及び平均表面粗さを特定の範囲に制御することにより、高い光輝度及び高いフロップ性という光学的特性を発現し得ることを見い出し、本発明を完成するに至った。

本発明は、平均粒径  $d_{50}$  が  $5 \sim 35 \mu\text{m}$  であり、平均厚み  $t$  ( $\mu\text{m}$ ) に対する平均粒径  $d_{50}$  ( $\mu\text{m}$ ) の比が  $30 \sim 90$  であり、かつ、平均表面粗さ  $R_a$  が  $20 \text{ nm}$  以下であるアルミニウム顔料を提供する。また、本発明は、前記顔料においてさらに表面粗さ曲線の凹凸の平均高さ  $R_c$  が  $80 \text{ nm}$  以下であるアルミニウム顔料を提供する。

さらに、本発明は、摩砕溶剤中で、比重が 5 以下の摩砕ボールを、アルミニウムに対して重量比で  $2 \sim 100$  の量で用いて、媒体攪拌ミル又はボールミルによりアルミニウムを摩砕することを含む前記アルミニウム顔料の製造方法をあわせて提供する。さらにまた、本発明は、前記製造方法において摩砕ボールの直径が  $4 \text{ mm}$  以下である製造方法を提供する。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、本発明（実施例 1）のアルミニウム顔料の原子間力顕微鏡（AFM）

による、粒子の表面形態観察像の写真である。

図2は、比較例1のアルミニウム顔料の原子間力顕微鏡（AFM）による、粒子の表面形態観察像の写真である。

発明を実施するための最良の形態

- 5      本発明において、アルミニウム顔料の平均粒径  $d_{50}$  ( $\mu\text{m}$ )、平均厚み  $t$  ( $\mu\text{m}$ )、水面拡散面積  $WCA$  ( $\text{m}^2/\text{g}$ )、平均表面粗さ  $Ra$  ( $\text{nm}$ )、及び平均高さ  $Rc$  ( $\text{nm}$ ) は、次のように定義される。

- 平均粒径  $d_{50}$  ( $\mu\text{m}$ ) は、レーザーミクロンサイザー  $LMS-24$ （セイシン企業㈱製）を用いて測定することができ、 $5 \sim 35 \mu\text{m}$  である。平均粒径  $d_{50}$  は、この範囲内で意図する意匠性に合わせて極細目、細目、中目、粗目又は極粗目として選択すればよい。平均粒径が  $5 \mu\text{m}$  以上のものは、塗膜中で一定方向に配向し易く、また、光の散乱が少なく、望ましい光輝度が発現し易い。また、平均粒径が  $35 \mu\text{m}$  以下のものは、粒子の大きさが塗膜の膜厚を超えることがないため、粒子の一部が塗膜表面に突出することが少なく、その結果きめ細かいメタリック塗膜を得ることができ実用的である。
- 15

平均厚み  $t$  ( $\mu\text{m}$ ) は、測定により得られた金属成分  $1 \text{ g}$  当たりの水面拡散面積  $WCA$  ( $\text{m}^2/\text{g}$ ) を用いて下式により算出した値である。

$$t = 0.4 / WCA$$

- 上記した平均厚みの算出方法は、例えば、Aluminium Paint and Powder, J. D. Edwards & R. I. Wray 著、第3版、Reinhold Publishing Corp. New York (1955) の第16～22頁に記載されている。
- 20

- 水面拡散面積は、一定の予備処理を行ったのち、JIS K 5906-1991 に従って求める。なお、JIS に記載されている水面拡散面積の測定方法はリーフィングタイプの場合のものであるのに対し、本発明のアルミニウム顔料はノンリーフィングタイプである。しかし、本発明における水面拡散面積の測定方法は、試料を5%ステアリン酸のミネラルスピリット溶液で予備処理を行う以外は、全て JIS K 5906-1991 に記載のリーフィングタイプの場合と同様である。試料の予備処理については、塗料原料時報、第156号、第2～16頁（1980. 9. 1 旭化成工業㈱発行）に記載されている。
- 25

本発明でいう平均厚み  $t$  に対する平均粒径  $d_{50}$  の比は、 $d_{50}/t$  で与えられ、  
いわゆる、アルミニウム顔料の扁平度である（以下、扁平度と呼ぶことがあ  
る。）。アルミニウム粉を媒体攪拌ミル又はボールミルで摩砕すると、扁平度は  
徐々に大きくなり、ある程度まで展延されると粒子は折れ曲がり易くなる。概し  
5 て、扁平度が 200 を超えると粒子にクラックが入りやすくなり折れ曲がり易く  
なる。本発明のアルミニウム顔料において、扁平度は 30 ~ 90 である。扁平度  
が 90 以下では、アルミニウム顔料表面が平滑であり、該表面での光の散乱が減  
少し正反射率が増大することにより光輝度が向上し、また、フロップ性も高くな  
る。また、扁平度が 30 以上で、アルミニウム顔料の重要な機能の一つである隠  
10 蔽力が維持され、実用に供し得る。

本発明で言う平均表面粗さ  $R_a$  は、次の方法により算出する。

アルミニウム顔料の表面形態観察法として、原子間力顕微鏡（以下 AFM と略  
記する）TMX-2010 (Topometrix 製) を使用する。前処理として、試料のアルミニ  
ウム顔料を過剰のメタノール及びクロロホルムで超音波洗浄後、真空乾燥し、再  
15 度アセトンに分散後、Si ウェハ上へ滴下し、自然乾燥を行う。AFM による  
表面粗さの定量は、アルミニウム顔料が他のアルミニウム顔料と重なりがないも  
のについて、 $5\mu\text{m}$  四方の視野につき表面粗さ曲線（表面凹凸のラインプロファ  
イル）を 300 スキャンにより測定し、粗さ曲線の算術平均粗さ（基準長さ  $5$   
 $\mu\text{m}$  内での標高の絶対値の算術平均）を求める。基準長さは、平均粒径  $d_{50}$  に  
20 よるが、 $5\mu\text{m}$  を基準とする。本願では、算術平均粗さを 3 視野以上測定し、更  
に算術平均した値を「平均表面粗さ  $R_a$  (nm)」として定義する。表面粗さの  
用語については、JIS B0660:1998 に基づく。

本発明のアルミニウム顔料の平均表面粗さ  $R_a$  は 20 nm 以下、好ましくは 1  
5 nm 以下である。20 nm 以下の時、表面での光の正反射率が大きいこと、極  
25 めて優れた光輝度を示すと共にフロップ性も良好であった。

アルミニウム顔料の表面粗さ曲線の凹凸の平均高さ  $R_c$  は、前記で測定した表  
面粗さ曲線において、表面粗さ曲線の山頂の高さの絶対値の平均値と表面粗さ曲  
線の谷底の深さの絶対値の平均値の和で表される。具体的には、表面粗さ曲線の  
算術平均高さを 3 視野以上測定し、さらにそれらを算術平均した値をいう。

本発明のアルミニウム顔料の平均高さ $R_c$ は、80 nm以下であることが好ましい。平均高さ $R_c$ が80 nm以下であると、極めて優れた高輝度を示すと共にフロップ性も良好であった。

- 5 本発明のアルミニウム顔料の表面は、走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察でも、表面の凹凸が少なく、また、表面に極微粉等の付着も少なく、また、粒子の中央から端部に至るまで均一な厚みを有するアルミニウム顔料粒子をかなり多く含む。

本発明のアルミニウム顔料を得るための好ましい製造方法は、特に、媒体攪拌ミル、又は、ボールミルによって原料となるアトマイズドアルミニウム粉を摩砕して製造される。

- 10 ボールミルなどで使用する摩砕ボールの比重は、5以下であることが好ましい。比重が5以下で表面粗さの小さいアルミニウム顔料が得られる。より好ましくは、比重が4以下である。なお、摩砕ボールの比重は、摩砕溶剤の比重より大きいことが望ましい。摩砕溶剤の比重より小さいと、摩砕ボールが溶剤に浮いてしまい摩砕ボール同士のずり応力が得られず摩砕が進まない。

- 15 このような摩砕ボールの材質としては、上記の比重範囲を満たすものであればよく、特に限定されない。例えば、ガラス球、アルミナ球、ジルコニア球等が使用できる。経済性及び品質の面からは、ガラス球を使用することが望ましい。摩砕ボールの表面粗さは、玉軸受用鋼球の JIS B 1501 の表面粗さ $R_a$  (最大) で0.08  $\mu\text{m}$  (等級G40) 以下のものが好ましい。更に好ましくは、0.04  $\mu\text{m}$  (等級G20) 以下のものである。

- 20 摩砕ボールの直径は、1~4 mmであることが好ましい。4 mm以下では、摩砕時間が著しく長くなるのを抑制すると共に、摩砕時のミル内の均一性が高くなり好ましい。また、1 mm以上であると、摩砕ボールが個々の運動をせず集団ないしは塊状で運動するために摩砕ボール同士のずり応力が低下し、摩砕が進行しなくなる現象、いわゆるグループモーションの発生を抑制することができる。

25 原料となるアトマイズドアルミニウム粉としては、アルミニウム以外の不純物の少ない物が好ましい。アトマイズドアルミニウム粉の純度は好ましくは99.5%以上、より好ましくは、99.7%以上で、更に好ましくは、99.8%以上である。

- アトマイズドアルミニウム粉の平均粒径は、 $2 \sim 20 \mu\text{m}$ が好ましく、 $3 \sim 12 \mu\text{m}$ がより好ましい。 $2 \mu\text{m}$ 以上でアルミニウム顔料の表面状態及び粒子形状が良好に保たれる。また、 $20 \mu\text{m}$ 以下であると、摩砕によるアルミニウム顔料表面の展延時間も短くてすみ、一方で摩砕ボールによるずり応力の履歴も少なく、
- 5 展延時間とともに増大する表面の起伏も顕著にならないので好ましい。

アトマイズドアルミニウム粉の形状としては、球状粉、涙滴状粉のようなものが好ましい。針状粉や不定形粉は、摩砕時のアルミニウム顔料の形状が崩れやすいため好ましくない。

- 摩砕溶剤の種類は、特に限定されないが、従来から使用されているミネラルス
- 10 ピリット、ソルベントナフサ等の炭化水素系溶剤や、アルコール系、エーテル系、ケトン系、エステル系等の低粘度の溶剤が使用できる。

- アルミニウム粉の摩砕条件としては、アルミニウム粉のアルミニウムの重量に対する摩砕ボールの重量の比が $2 \sim 100$ であることが好ましく、 $10 \sim 100$ がより好ましく、 $14 \sim 65$ であることがより好ましい。アルミニウム粉のアル
- 15 ミニウム重量に対する摩砕ボールの重量の比が2以上であると、表面粗さの小さいアルミニウム顔料が得られ、光輝度及びフロップ性が高いものが得られ好ましい。また、上記の比が100以下であると、摩砕時間及び生産性をともに実用的な範囲にとどめることができる。

- また、アルミニウム粉のアルミニウムの重量に対する摩砕溶剤の重量の比が、
- 20 1.  $8 \sim 30$ であることが好ましく、2.  $6 \sim 18$ であることがより好ましい。アルミニウムの重量に対する摩砕溶剤の重量の比が、上記の範囲を超える条件で摩砕した場合には、アルミニウム顔料の隠蔽力は増大するが、反射率が大幅に低下するため好ましくない。これは、ミル内が不均一な状態になるためと推定される。

- 25 また、磨砕助剤を使用することもできる。磨砕助剤としては、ノンリーフィング顔料としての特性を示すものであれば、特に限定されるものではないが、通常使用されるオレイン酸、ステアリルアミン等が挙げられ、アルミニウム粉の重量に対し $1 \sim 50$ 重量%の量で使用することが好ましい。

本発明のアルミニウム顔料には、マイカや着色顔料等を併用することも可能で



ある。

以下、本発明の代表的な実施例を示す。なお、実施例及び比較例中で用いた各種物性の測定方法は以下の通りである。

① 平均粒径： $d_{50}$

- 5 レーザーミクロンサイザー LMS-24 により測定した。測定溶剤としては、ミネラルスピリットを使用した。試料となるアルミニウム顔料は、前処理として2分間の超音波分散を行った。

② 平均厚み： $t$

- 10 まず、アルミニウム顔料 1 g に、5%ステアリン酸のミネラルスピリット溶液を 1~2 ml 加えて予備分散した後、石油ベンジン 50 ml を加えて混合し、40~45℃で2時間加熱後、フィルターで吸引濾過し、パウダー化したもので、水面拡散面積を測定した。この測定値から、下記の式に従って平均厚み： $t$ を算出した。

$$t (\mu\text{m}) = 0.4 / \text{WCA} (\text{m}^2/\text{g})$$

15 ③ 平均表面粗さ： $R_a$

原子間力顕微鏡 (AFM) を用いてアルミニウム顔料の 1 視野 5  $\mu\text{m}$  四方のラインプロファイル (300 スキャン) を求める。これより算術平均表面粗さを求める。同様の操作を合計 3 視野以上について行い、それらの算術平均値を求めて  $R_a$  とした。

20 ④ 表面粗さ曲線の凹凸の平均高さ： $R_c$

前記③で求めたものと同じラインプロファイルにより、表面粗さ曲線の凹凸の平均高さを求める。同様の操作を合計 3 視野以上について行い、それらの算術平均を求めて  $R_c$  とした。

⑤ 光輝度とフロップ性の評価

25 (1) 塗料・塗膜の作製

アルミニウム顔料 5 g にアクリック No. 2000 GL シンナー (関西ペイント (株) 製) 8 g を加え、予備分散し、さらに、アクリック No. 2026 GL クリアー (関西ペイント (株) 製) 9.7 g を加え、ペイントシェイカーで 10 分震蕩した。得られたシルバーメタリック塗料を、アート紙上に、9 mil のアプリーケーター

を用いて塗膜を作製後、室温で乾燥した。

## (2) 測色

塗料の研究、No.117、第67～72頁（1989年、関西ペイント㈱発行）  
に記載の方法に従って、レーザー式メタリック感測定装置アルコーブLMR-2  
5 00（関西ペイント㈱製）を用いて評価した。入射角45度にレーザー光源が配  
置され、受光角0度と-35度に受光器が配置されている光学的条件下で測定し  
た。

レーザーの反射光のうち、塗膜表面で反射する鏡面反射領域の光を除いて、最  
大光強度が得られる受光角-35度でIV値を求めた。IV値はアルミニウム顔  
10 料からの正反射光強度に比例するパラメーターであり、光輝度の大小を表す。

また、観察角度（受光角）が変化した時の反射光強度の変化度合いを平均反射  
強度で無次元化してFF値を求めた。FF値は、アルミニウム顔料の配向度合い  
に比例するパラメーターであり、顔料のフロップ性の大小を表す。

### 実施例1

15 内径30cm、長さ35cmのボールミル内に、アトマイズドアルミニウム粉  
（平均粒径6 $\mu$ m）250g、ミネラルスピリット1.2kg、及び、オレイン  
酸25gからなる配合物を充填し、直径3mmのガラスビーズ（比重2.6）1  
5kgを用い、60rpmで10時間摩砕した。

磨砕終了後、ミル内のスラリーをミネラルスピリットで洗い出し、400メッ  
20 シュの振動篩にかけ、通過したスラリーをフィルターで濾過、濃縮し、加熱残分  
80%のケーキを得た。得られたケーキを縦型ミキサー内に移し、所定量のソル  
ベントナフサを加え、15分混合し、加熱残分75%のアルミニウム顔料を得た。

得られたアルミニウム顔料について、輝度とフロップ性の評価を行った。結果  
を表1に示す。

### 25 実施例2

原料アトマイズドアルミニウム粉の平均粒径を10 $\mu$ mとし、摩砕15時間と  
した以外は実施例1と同様の操作を行い、アルミニウム顔料を得た。この顔料に  
ついて輝度とフロップ性の評価を行った。結果を表1に示す。

### 実施例3

原料アトマイズドアルミニウム分の平均粒径を  $8\ \mu\text{m}$  とし、直径  $2\ \text{mm}$  のガラスビーズを用い、表 1 に示す摩砕ボール、摩砕溶剤及びアルミの重量比で摩砕を  $60\ \text{rpm}$  で 12 時間行った以外は実施例 1 と同様の操作を行い、アルミニウム顔料を得た。この顔料について輝度とフロップ性の評価を行った。結果を表 1 に示す。

#### 比較例 1

原料アトマイズドアルミニウム粉の平均粒径を  $30\ \mu\text{m}$  としたものを原料として用い、内容量  $4.9\ \text{L}$  のジャケット付きアトライターを使用した。アトライターの容器内に  $7\ \text{mm} \sim 13\ \text{mm}$  のガラスビーズを  $9\ \text{kg}$ 、ミネラルスピリット  $9\ \text{kg}$ 、及びステアリルアミン  $20\ \text{g}$  を投入した。アジテーターを  $27\ \text{rpm}$  で回転させ、その 1.5 分後に前記アルミニウム原料  $600\ \text{g}$  を徐々に投入した。投入完了後 5 分間そのままの速度にて運転し、以後  $100\ \text{rpm}$  にてアジテーターを回転し、5 時間粉碎した。その後、アトライター内のスラリーをミネラルスピリットで洗い出し、 $400$  メッシュの振動篩にかけ、篩を通過したスラリーを  
15 フィルターで濾過、濃縮し、加熱残分  $78\%$  のケーキを得た。得られたケーキを縦型ミキサー内に移し、所定量のソルベントナフサを加え 15 分間混合し、加熱残分  $75\%$  のアルミニウム顔料を得た。

得られたアルミニウム顔料について、輝度とフロップ性の評価を行った。結果を表 1 に示す。

#### 20 比較例 2

内径  $30\ \text{cm}$ 、長さ  $35\ \text{cm}$  のボールミル内に、アトマイズドアルミニウム粉（平均粒径  $20\ \mu\text{m}$ ） $600\ \text{g}$ 、ミネラルスピリット  $1.2\ \text{kg}$ 、及び、ステアリン酸  $6\ \text{g}$  からなる配合物を充填し、直径  $4.8\ \text{mm}$  のスチールボール（比重  $7.8$ ）を  $18\ \text{kg}$  を用い、 $60\ \text{rpm}$  で 5 時間摩砕した。

25 粉碎終了後、ミル内のスラリーをミネラルスピリットで洗い出し、 $400$  メッシュの振動篩にかけ、通過したスラリーをフィルターで濾過、濃縮し、加熱残分  $87\%$  のケーキを得た。得られたケーキを縦型ミキサー内に移し、所定量のソルベントナフサを加え、15 分混合し、加熱残分  $75\%$  のアルミニウム顔料を得た。

得られたアルミニウム顔料について、輝度とフロップ性の評価を行った。結果

を表 1 に示す。

### 比較例 3

内径 30 cm、長さ 35 cm のボールミル内に、球状アトマイズドアルミニウム粉（平均粒径 12  $\mu$ m、アスペクト比は約 1.5 : 1 ~ 1 : 1）250 g、オ  
5 レイン酸 250 g を充填し、直径 3.2 mm のスチールボール（比重 7.8）1  
kg を用い、60 rpm で 5 時間粉碎した。

粉碎終了後、ミル内容物をミネラルスピリットで洗い出し、400 メッシュの  
振動篩にかけ、通過したスラリーをフィルターで濾過、濃縮し、加熱残分 95 %  
のアルミニウム顔料を得た。得られた粉末状のアルミニウム顔料について、上記  
10 の測定を行った。なお、光輝度とフロップ性の評価における塗料の作製では、上  
記加熱残分 95 % のアルミニウム顔料を、加熱残分 75 % に換算した顔料重量に  
して、シルバーメタリック塗料の配合を行った。

また、得られたアルミニウム顔料の形状は、フレーク状ではなく、原料のアト  
マイズドアルミニウム粉の球状に近いものであり、アスペクト比は約 2 : 1 より  
15 小さいことが、走査型電子顕微鏡観察により認められた。

形状がフレーク状でないため、水面拡散面積は測定不可能であった。

### 産業上の利用可能性

本発明のアルミニウム顔料は、自動車用等の油性及び水性メタリック塗料用ア  
ルミニウム顔料として有用であり、また、インキ用顔料や、樹脂練り込み用アル  
20 ミニウム顔料としても有用である。

表 1.

	磨砕機		磨砕機		磨砕機		原料の平均粒径	磨砕剤		d <sub>50</sub> (μm)	WCA (m <sup>2</sup> /g)	t (μm)	d <sub>50</sub> /t	Ra (nm)	Rc (nm)	IV値	IFF値
	直径	比重	重量比	重量	重量比	重量		種類	重量比								
実施例 1	3mm	2.6	15kg/0.25kg (60.7)	15kg/0.25kg (4.8)	0.1	1.2kg/0.25kg (4.8)	6 μm	クエン酸	0.1	14	1.2	0.3	47	7.5	70	380	1.80
実施例 2	3mm	2.6	15kg/0.25kg (60.7)	15kg/0.25kg (4.8)	0.1	1.2kg/0.25kg (4.8)	10 μm	クエン酸	0.1	31	0.8	0.5	62	12.1	60	395	1.89
実施例 3	2mm	2.6	7.5kg/0.25kg (30)	1.6kg/0.25kg (6.4)	0.2	1.6kg/0.25kg (6.4)	8 μm	クエン酸	0.2	18	1.0	0.4	45	10.5	65	385	1.85
比較例 1	7mm ~13mm	2.6	9kg/0.6kg (15.0)	0.9kg/0.6kg (1.5)	0.03	0.9kg/0.6kg (1.5)	30 μm	スチレン酸	0.03	26	0.4	1.0	26	21.0	100	230	1.45
比較例 2	4.8mm	7.8	18kg/0.6kg (30)	1.2kg/0.6kg (2.0)	0.01	1.2kg/0.6kg (2.0)	20 μm	スチレン酸	0.01	25	1.3	0.3	83	32.5	110	185	1.05
比較例 3	3.2mm	7.8	1kg/0.25kg (4)	0kg/0.25kg (0)	1.0	0kg/0.25kg (0)	12 μm	クエン酸	1.0	13	測定不可	算出不可	<2	>50	>200	85	0.5

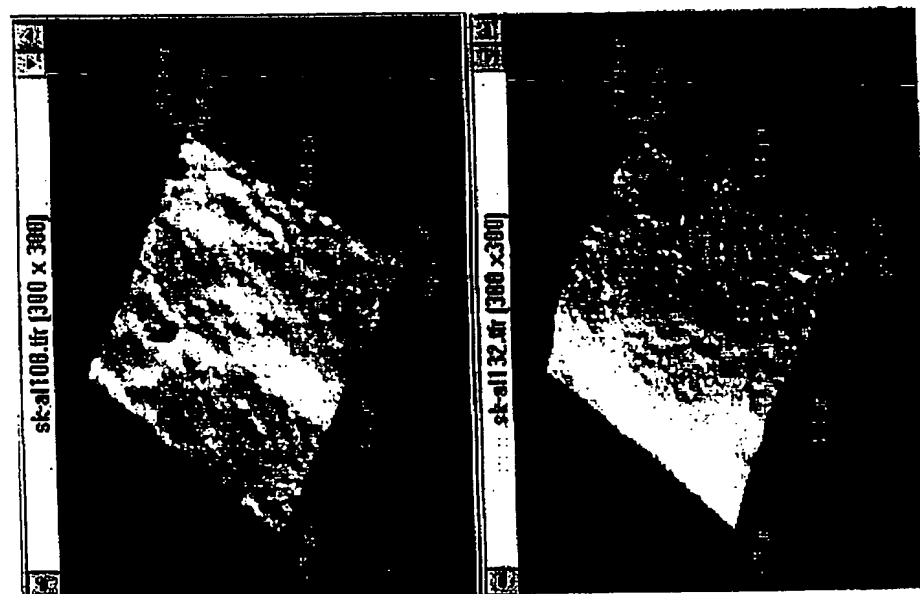
## 請求の範囲

1. 平均粒径  $d_{50}$  が  $5 \sim 35 \mu m$  であり、平均厚み  $t$  ( $\mu m$ ) に対する平均粒径  $d_{50}$  ( $\mu m$ ) の比が  $30 \sim 90$  であり、かつ、平均表面粗さ  $R_a$  が  $20$   
5 nm以下であるアルミニウム顔料。
2. 前記平均表面粗さ  $R_a$  が  $15$  nm以下である請求項1記載のアルミニウム顔料。
3. 表面粗さ曲線の凹凸の平均高さ  $R_c$  が、 $80$  nm以下である請求項1記載のアルミニウム顔料。
- 10 4. 表面粗さ曲線の凹凸の平均高さ  $R_c$  が、 $80$  nm以下である請求項2記載のアルミニウム顔料。
5. 摩砕溶剤中で、比重が5以下の摩砕ボールを、アルミニウムに対して重量比で  $2 \sim 100$  の量で用いて、媒体攪拌ミル又はボールミルによりアルミニウムを摩砕することを含む、請求項1記載のアルミニウム顔料の製造方法。
- 15 6. 前記重量比が  $10 \sim 100$  である請求項5記載の方法。
7. 摩砕ボールの直径が  $1 \sim 4$  mm以下である請求項5記載の製造方法。
8. 摩砕ボールの直径が  $1 \sim 4$  mm以下である請求項6記載の製造方法。
9. 摩砕されるアルミニウムがアトマイズドアルミニウム粉であり、その平均粒径が  $2 \sim 20 \mu m$  である請求項5記載の製造方法。
- 20 10. 前記摩砕溶剤がアルミニウムの重量に対して  $1.8 \sim 30$  の重量比で用いる請求項5記載の製造方法。

FIG. 2



FIG. 1



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/02072

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int.Cl <sup>6</sup> B22F1/00, C09C1/64, C09C3/04  According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl <sup>6</sup> B22F1/00, C09C1/64, C09C3/04, B22F9/04  Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1999 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1999 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1999  Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JOIS Aruminium Goukin&, Aruminiumu Fun&, Aruminium, Ganryou&, Toryou&, Funsai&, Masai&, Hasai&, Boorumiru&		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 6-68121, B2 (Toyo Alminium K.K.), 31 August, 1994 (31. 08. 94) & EP, 305158, B2	1-10
A	JP, 9-194756, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 29 July, 1997 (29. 07. 97), Page 6, column 10, Par. No. [0030] (Family: none)	1-10
A	JP, 8-41368, A (Hoechst AG.), 13 February, 1996 (13. 02. 96), Page 9, column 15, Par. No. [0073] & EP, 678559, A1	1-10
A	JP, 7-145407, A (Teikoku Piston Ring Co., Ltd.), 6 June, 1995 (06. 06. 95) (Family: none)	1-10
A	Coating Jihou, No. 185, 20 January, 1990 (20. 06. 90), pp. 13-14	1-10
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 7 July, 1999 (07. 07. 99)		Date of mailing of the international search report 21 July, 1999 (21. 07. 99)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.



## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 99/02072

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>8</sup> B22F 1/00, C09C 1/64, C09C 3/04

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>8</sup> B22F 1/00, C09C 1/64, C09C 3/04, B22F 9/04

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926 - 1996 年  
 日本国公開実用新案公報 1971 - 1999 年  
 日本国登録実用新案公報 1994 - 1999 年  
 日本国実用新案登録公報 1996 - 1999 年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS アルミニウムゴウキン&, アルミニウムフン&, アルミニウム, ガンリョウ&, トリョウ&,  
 フンサイ&, マサイ&, ハサイ&, ボールミル&

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 6-68121, B2 (東洋アルミニウム株式会社), 31. 8月. 1994 (31. 08. 94) &EP, 305158, B2	1-10
A	J P, 9-194756, A (旭化成工業株式会社), 29. 7月. 1997 (29. 07. 97), 第6頁第10欄段落0030, (ファミリーなし)	1-10
A	J P, 8-41368, A (ヘキスト・アクチエンゲゼルシャフ ト), 13. 2月. 1996 (13. 02. 96), 第9頁第15欄段落0073, &EP, 678559, A1	1-10

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07. 07. 99

国際調査報告の発送日

21.07.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

刑 部 俊 印

4K

8719

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 7-145407, A (帝国ビストンリング株式会社), 6. 6月. 1995 (06. 06. 95) (ファミリーなし)	1-10
A	コーティング時報, No. 185, 20. 1月. 1990 (20. 06. 90), pp. 13-14	1-10

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**